



TITLE:

High-Order Harmonic Generation from  
Coherently Rotating Molecules with High-  
Intensity Ultrashort Laser Pulses(  
Abstract\_要旨)

AUTHOR(S):

Yoshii, Kazumichi

---

CITATION:

Yoshii, Kazumichi. High-Order Harmonic Generation from Coherently Rotating Molecules with High-Intensity Ultrashort Laser Pulses. 京都大学, 2010, 博士(エネルギー科学)

ISSUE DATE:

2010-03-23

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/120416>

RIGHT:

( 続紙 1 )

京都大学	博士 (エネルギー科学)	氏名	吉井 一倫
論文題目	High-Order Harmonic Generation from Coherently Rotating Molecules with High-Intensity Ultrashort Laser Pulses (超短パルス高強度レーザーによるコヒーレント回転分子からの高次高調波発生)		
(論文内容の要旨)			
<p>本論文は、超短パルス高強度レーザーと外場のない自由空間でコヒーレントに回転する気相分子との非線形相互作用によって誘起できる高次高調波発生の物理過程の解明と応用を目的として行った研究の成果をまとめたものであり、8章からなっている。</p> <p>第1章は序論であり、研究の背景、目的、及び意義について述べている。超短パルス高強度レーザーと気相の原子・分子との非摂動論的非線形相互作用によって誘起される高次高調波発生(HHG)、及び同レーザーパルスで発現できる非断熱分子配向過程について、これまでの研究の背景を概観し、ポンプ・プローブ法を用いた配向分子からのHHG過程に関する実験研究の意義と動機を論じると共に本研究の目的を述べている。</p> <p>第2章では、非断熱的に配向させた分子からのHHG過程を記述するために用いた理論モデルを説明している。高強度なフェムト秒レーザーパルスで誘起される非断熱的分子配向を記述する量子理論を述べ、実験的に実現できる分子配向度の計算方法を説明している。従来、過渡的に超高速配向する分子からの高次高調波信号を再現できる理論モデルはなかったが、最近、レーザーで誘起される回転波束の統計分布と単一分子の非線形応答のコヒーレント加算を正しく考慮した理論モデルが開発された。同理論モデルの概要とそれを用いた高次高調波信号の計算方法を説明し、同理論によって分子配向とHHG過程を統一的に記述できることを議論している。</p> <p>第3章では、本研究で用いた実験装置と実験方法を述べている。Ti:sapphireレーザーチャープパルス増幅システムの構成と動作原理、システムからのフェムト秒レーザー出力（パルス幅~ 40 fs, 先頭出力~ 1 TW）を用いたポンプ・プローブ法、及び真空紫外~軟X線スペクトル域で発生する高次高調波の分光・計測方法と信号処理の方法について説明している。</p> <p>第4章は、ポンプ・プローブ実験において、配向させた分子を非線形媒質として発生させる高次高調波信号の基本的な特性に関する結果を示している。ポンプパルスとプローブパルス間の時間遅延を掃引することによって、高次高調波信号の時間発展をN<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub>分子について測定し、個々の分子種に関する変調信号とその周波数スペクトルの特性を議論している。コヒーレントに超高速配向と回復を繰り返している分子集合からの高調波信号が、分子の配向度の時間発展の波形と定性的に一致すること、及び分子種に特徴的な周波数スペクトルを示すことを述べ、同信号によって回転波束の形成過程などの基礎特性が把握できることを示している。</p> <p>第5章では、配向分子からのHHGの特性を記述する理論の実験的検証を行っている。N<sub>2</sub>とO<sub>2</sub>分子はともに直線2原子分子であるが、異なる最高被占分子軌道（HOMO）を持っている。両分子について高次高調波信号の時間発展、ポンプパルスの偏光</p>			

方向に対する信号の角度依存性、及び信号の配向度依存性を詳細に測定し、結果を第2章で述べた理論モデルによる計算結果と比較した。両者は非常に良く一致しており、用いた理論の正当性と有効性が証明されている。この結果から、理論モデルで予想されているように、 $\text{N}_2$ と $\text{O}_2$ の分子軸まわりの高調波強度分布がHOMOの電荷分布に強く依存することを検証している。

第6章では、第5章の結果を発展させることによって、分子集合について測定したHHG信号から単一分子のHHG分布を取得する手法を開発し、その有効性を検証した実験結果が記述されている。従来の研究では、配向分子からのHHG信号に必然的に含まれる分子軸の統計的な分布 $\rho(\theta)$ の影響が無視されていた。そのため、実験結果から単一分子に関するHHG分布を正しく導出した例は皆無であった。本研究ではこの点に着目し、実験結果から $\rho(\theta)$ を評価することによってHHG角度分布を正確に再構築することを試みた。その結果、 $\text{N}_2$ と $\text{O}_2$ 分子について、HOMOの構造を仮定することなく、配向分子からのHHGの実験結果だけを基にして、単一分子からのHHG角度分布を帰納的に再構成できる手法を開発することに成功し、それを検証している。

第7章では、配向分子からのHHGを応用することによって、分子の回転温度を測定するための新しい手法を開発・実証している。HHG信号の時間的・空間的な高分解能特性と理論モデルを利用し、超音速パルスジェットとして真空中に放出される分子ビーム中の分子の回転温度を測定した。配向用のレーザーパラメーターを固定したとき、HHG信号の時間発展は試料分子ビームの回転温度にのみに依存する。ターゲット分子の背圧とノズル出口からレーザーとの相互作用位置までの距離を変化させてHHG信号を測定し、計算結果と比較することによって回転温度を詳細に評価・議論している。他の手法による回転温度の測定結果と比較することにより、開発した手法の正当性と有用性を議論している。

第8章はまとめであり、本研究で得られた主要な結論を述べている。

(続紙 2 )

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、超短パルス高強度レーザーとコヒーレントに回転する気相分子との非摂動論的非線形相互作用によって誘起される高次高調波発生 (HHG) の物理過程の解明と応用を目的として行った研究の成果をまとめたものであり、得られた主な成果は次のとおりである。

1) 高強度なフェムト秒Ti:sapphireレーザーパルスを用い、配向分子から高次高調波を発生するためのポンプ・プローブ実験手法を確立した。この手法を用いて、過渡配向を繰り返す $N_2$ と $O_2$ 分子からの高次高調波信号の時間発展と角度分布、及び信号の分子配向度依存性を測定した。一方、回転波束の統計分布と単一分子の非線形応答のコヒーレントな和を正しく考慮した最近の理論モデルを用いて高調波信号の計算を行い、実験結果と比較した。実験と理論の結果は良い一致を示し、同理論によって分子配向とHHGを統一的に扱えることを検証した。

2) 異なる最高被占分子軌道 (HOMO) をもつ $N_2$ と $O_2$ についてHHG効率の角度分布を測定し、HHG過程がHOMOの電荷分布に強く依存することを示した。また、高調波信号の強度分布が分子の配向度に強く依存することを明らかにし、理論モデルを用いて実験結果を解析することによって、単一分子からのHHG分布が導出できることを示した。

3) 配向分子に関する実験結果を基に、高調波信号に必然的に含まれる分子軸の統計的な空間配向分布の影響を正確に評価することにより、HOMOを仮定せずに単一分子からのHHG分布を帰納的に再構成する手法を開発した。同手法を $N_2$ と $O_2$ に適用し、HHGの時間発展信号と角度分布の測定結果だけから、単一分子軸周りのHHG分布を得ることに成功した。

4) 配向分子からのHHGを応用し、高時間・高空間分解能を持つ分子の回転温度測定法を開発した。レーザー強度とパルス幅を固定すると、HHGの時間発展信号と周波数スペクトルは回転温度にのみ依存する。この点に着目し、超音速パルス分子ビームの回転温度を $N_2$ と $O_2$ について測定した。結果を他のレーザー分光測定の結果と比較することにより、同手法の汎用性と有用性を実証した。

以上の研究は、超短パルス高強度レーザーによって非断熱的に誘起される分子配向と配向分子からの高次高調波発生の詳細な物理過程を解明すると共に、実験結果から単一分子の電子構造や非線形応答特性を導く手法を初めて構築し、得られた知見を応用して新規の分子計測手法を開発したものであり、超短パルス高強度レーザーによる物質制御や超高速光計測、コヒーレント真空紫外光源の開発など、今後のレーザー科学の発展にとって学術上、實際上、寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士 (エネルギー科学) の学位論文として価値あるものと認める。また、平成22年2月1日に実施した論文内容とそれに関連した試問の結果合格と認めた。

論文内容の要旨及び審査の結果の要旨は、本学学術情報リポジトリに掲載し、公表とする。特許申請、雑誌掲載等の関係により、学位授与後即日公表することに支障がある場合は、以下に公表可能とする日付を記入すること。

要旨公開可能日：            年            月            日以降